

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 04-226750
(43)Date of publication of application : 17.08.1992

(51)Int.Cl. B32B 7/02
B32B 17/10
C03C 4/06
C03C 27/12

(21)Application number : 02-418084

(71)Applicant : NISSAN MOTOR CO LTD
MITSUBISHI KASEI CORP
CENTRAL GLASS CO LTD

(22)Date of filing : 28.12.1990

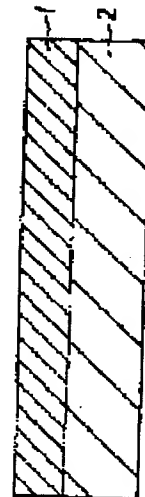
(72)Inventor : ITO HITOSHI
MAEDA SHUICHI
MITSUHASHI KAZUO
UMEBAYASHI MASANORI
NAKAMURA ISAO

(54) LAMINATED SAFETY GLASS HAVING PHOTOCHROMIC LIGHT CONTROL FUNCTION

(57)Abstract:

PURPOSE: To provide laminated safely glass having photochromic light control function and having at least a two-layer structure wherein one side of the glass is a glass layer and the other side is a synthetic resin layer.

CONSTITUTION: In laminated safety glass having at least a two-layer structure consisting of a glass layer 1 and a synthetic layer, the synthetic resin layer is composed of a thermoplastic polyurethane layer 2 wherein a photochromic compound is uniformly dispersed in thermoplastic polyurethane obtained by the reaction of three components of polyester diol, diisocyanate and a chain extender.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平4-226750

(43) 公開日 平成4年(1992)8月17日

(51) Int.Cl. ⁹	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
B 3 2 B 7/02	1 0 3	7188-4F		
		7148-4F		
C 0 3 C 4/06		6971-4G		
27/12	N	7821-4G		

審査請求 未請求 請求項の数 1 (全 5 頁)

(21) 出願番号	特願平2-418084	(71) 出願人	000003997 日産自動車株式会社 神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地
(22) 出願日	平成2年(1990)12月28日	(71) 出願人	000005968 三菱化成株式会社 東京都千代田区丸の内二丁目5番2号
		(71) 出願人	000002200 セントラル硝子株式会社 山口県宇部市大字沖宇部5253番地
		(72) 発明者	伊藤 仁 神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 日産 自動車株式会社内
		(74) 代理人	弁理士 杉村 暁秀 (外5名) 最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 フォトクロミック調光機能を有する積層安全ガラス

(57) 【要約】

【目的】 片面がガラス層で他面が合成樹脂層である少なくとも2層構造を有し、フォトクロミック調光機能を有する積層安全ガラスを提供する。

【構成】 片面がガラス層2で、他面が合成樹脂層から成り、その少なくとも1層がポリエステルジオール、ジイソシアネート、および鎖伸長剤の3成分の反応により得られる熱可塑性ポリウレタンにフォトクロミック化合物が均一に分散された熱可塑性ポリウレタン層2から成る。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 ガラス層および合成樹脂層の少なくとも2層構造を有する積層体からなる透明な積層安全ガラスにおいて、合成樹脂層がフォトクロミック化合物を含む熱可塑性ポリウレタン層を有することを特徴とするフォトクロミック調光機能を有する積層安全ガラス。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 この発明は、フォトクロミック調光機能を有する積層安全ガラスに関する。

【0002】

【従来の技術】 従来のフォトクロミック調光機能を有する積層ガラスとしては、例えば図3に示すようなものがある。図3において、6はガラス、またはポリメチルメタクリレート、ポリカーボネート、ポリエチレンテレフタレート樹脂などの透明支持体、7はポリビニルブチラール(PVB)にフォトクロミック組成物を印刷、浸漬、スプレー、混練などの操作によって処理して形成したフォトクロミック中間膜である。このような、積層ガラスは2枚の透明支持体の間に粘着性を有するポリビニルブチラール樹脂シートを挟み込んで熱圧着することにより得られる。この積層体に太陽などの紫外線が当たると、フォトクロミズムを起こし調光機能が発現される。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】 しかしながら、このような従来のフォトクロミック調光機能を有する積層ガラスにあっては、PVBシートを用いた積層安全ガラスの場合は、PVBにフォトクロミック化合物を含有させれば調光機能を発現できるが、特開昭53-27671号公報に示された片面がガラスで他面が合成樹脂である少なくとも2層構造の無機ガラス-合成樹脂積層体からなる透明の積層安全ガラスで合成樹脂層に熱可塑性ポリウレタンを使用している、いわゆるパイレイヤーガラスの場合には、フォトクロミック化合物で処理したPVBシートを用いることができないという問題点があった。

【0004】

【課題を解決するための手段】 本発明は、このような従来の問題点に着目してなされたもので、片面がガラスで、他面が合成樹脂層である少なくとも2層構造の無機ガラス-合成樹脂積層体からなる透明の積層安全ガラスにおいて、熱可塑性ポリウレタン中にフォトクロミック化合物を含有させることにより調光機能を発現させた層を有するようにしたことにより上記問題点を解決したものである。

【0005】 従って本発明は、ガラス層および合成樹脂層の少なくとも2層構造を有する積層体からなる透明な積層安全ガラスにおいて、合成樹脂がフォトクロミック化合物を含む熱可塑性ポリウレタン層を有することを特徴とするフォトクロミック調光機能を有する積層安全ガラスに関するものである。

【0006】 本発明で使用する上記熱可塑性ポリウレタンは、ポリエステルジオール、ジイソシアネート、および鎖伸長剤として炭素数2~10の脂肪族ジオールもしくはジアミンの3成分を反応させることにより得られる。

【0007】 使用されるポリエステルジオールとしては、ポリ(ε-カプロラクトン)ジオール、ポリ(1,4-ブチレンアジペート)ジオール、及びポリ(1,4-ブチレンセバレート)ジオール等から選択できる。

【0008】 次に、使用されるジイソシアネートとしては、ガラスに使用する関係から無黄色性のジイソシアネートが好ましいので、芳香環に直接イソシアネート基を有しないジイソシアネートの使用が好ましい。具体的には、4,4'-メチレン-ビス(シクロヘキシルイソシアネート)、イソホロンジイソシアネート、イソプロピリデン-(シクロヘキシルイソシアネート)、メチルシクロヘキシルジイソシアネート、ヘキサメチレンジイソシアネート等を選択できる。

【0009】 次に、鎖伸長剤に用いる炭素数2~10の脂肪族ジオールとしては、エチレングリコール、1,4-ブタンジオール、プロピレングリコール、1,3-プロパンジオール、ジエチレングリコール、ジプロピレングリコール、ネオペンチルグリコール、1,6-ヘキサンジオールジメチロールプロピオン酸等を選択できるが、特にエチレングリコール、1,4-ブタンジオールが好ましい。また、ジアミンとしては、エチレンジアミン、テトラメチレンジアミン、ヘキサメチレンジアミン、イソホロンジアミン、1,4-ジアミノシクロヘキサン等を選択できる。

【0010】 上記主要な3成分の割合は、特に限定されるものではないが、いずれも2価の化合物であるので反応割合を示すと(ポリエステルジオールと鎖伸長剤の合計モル数):イソシアネート化合物の比は0.9~1.1で、特に1が好ましく、ポリエステルジオールと鎖伸長剤のモル比は0.8~5.0で特に1が適当である。通常、これら3成分を触媒の存在下に反応させるが無触媒で反応を行うこともできる。触媒としては、ジブチル錫ジウレートなどの有機スズ化合物、その他の金属化合物、及び、トリエチレンジアミンなどの第3級アミン触媒を単独であるいは組み合わせて使用することができる。

【0011】 調光物質であるフォトクロミック化合物は、均一にポリウレタン中に分散させるためにも、この3成分の反応の段階で加えるのが好ましい。フォトクロミック化合物は特に限定されないが、調光用途として用いる場合は、地表に届く太陽光の紫外線でフォトクロミズムを起こし、着色体の吸光計数が高いスピロオキサジン系化合物を用いることが望ましい。かかるスピロオキサジン系化合物としては、特開昭61-186390号、同61-263982号、同61-263983号、同62-153292号、同63-14786号、同63-30486号、同63-30487号、同63-30488号、同63-30489号、同63-115884号、同63-1158

85号、同63-303984号、特開平2-101080号、同2-157283号、各公報等に記載されているものが挙げられる。また添加する量も特に限定されないが、過剰に添加しても、調光機能はある極大値を示した後は低下するし、少な過ぎても十分な調光機能が発現されない。添加量は、必要とする熱可塑性ポリウレタンシートの膜厚に応じて決定することが好ましい。添加量の目安としては、フォトクロミック化合物を添加することによって得られる熱可塑性ポリウレタンシートの紫外線域（フォトクロミズムを起こす波長範囲：330～380nm）の平均の吸光度が0.5～4.0の範囲に入るように調整することが好ましい。また、この段階で必要に応じて酸化防止剤、光安定剤、消光剤、紫外線吸収剤などの公知の各種添加剤も加えることができる。

【0012】上記主要3成分にフォトクロミック化合物を使用してキャスト法により直接フォトクロミック熱可塑性のポリウレタンシートを製造することができる（特開昭53-27671号公報等参照）。しかしながら、好ましくは熱可塑性ポリウレタンを調製した後、ペレット化し、押し出し成形でシート化を行い熱可塑性ポリウレタンのシートを得る。

【0013】上記熱可塑性ポリウレタンのシートを利用し、これとガラス板を積層し、バイレイヤーガラスを得る。図1に、このようにして得られた一例のバイレイヤーガラスの断面図を示す。図示する例のバイレイヤーガラスは、1層の熱可塑性ポリウレタン層1と、1層のガラス層2とからなる2層構造のバイレイヤーガラスである。熱可塑性ポリウレタン層1の露出面は必要により耐溶剤性向上のための処理を行って耐溶剤性を改良する。このように露出面の耐溶剤性を必要に応じて改良する場合は、熱可塑性ポリウレタン層が架橋性基を導入し易いようにカルボン酸基等を有することが好ましい。カルボン酸基を有する熱可塑性ポリウレタンはジメチロールプロピオン酸等のカルボン酸基を有する鎖伸長剤を単独、あるいは他の鎖伸長剤と併用することによって製造可能である。図2はこのようにして耐溶剤性を向上させたバイレイヤーガラスを示す図で、図示するガラスでは2層構造の合成樹脂層3と1層のガラス層2とからなる3層構造のものである。合成樹脂層3の主要層である4は熱可塑性ポリウレタンからなり、露出面を有する最外層5は耐溶剤性の表面処理を施した層で熱硬化性ポリウレタンなどの耐溶剤性の高い樹脂からなる。

【0014】この合成樹脂シートとガラス板との積層は熱圧着で行なわれることが望ましい（特開昭53-27671号公報）。特に、順次重ねてそれらの間に存在する空気を減圧除去する予備圧着工程と予備圧着された積層体をオートクレーブ中で加熱する本圧着工程の2工程で行なう熱圧着方法の採用が好ましい。その他、予備圧着を行なうことなく、ロールによる圧着法、プレス法等の熱圧着方法でバイレイヤーガラスを得ることも可能である。

【0015】本発明の積層安全ガラス、即ちバイレイヤーガラスは自動車用のフロントガラスに特に適しているが、自動車用の他のガラス、建築物の窓ガラスにも使用可能である。バイレイヤーガラスの厚さは特に限定されるものではないが、合成樹脂層の厚さは0.2mm以上、特に0.4～10mmが好ましく、ガラス層は2mm以上、特に3.5～5mmが好ましい。

【0016】

【実施例】以下に本発明を実施例により具体的に説明するが本発明はこれら実施例のみに限定されるものではない。

【0017】実施例1

（フォトクロミック調光ポリウレタンシートの製造）水酸基価56であるポリ（1,4-ブチレンアジペート）ジオール1500gを真空下110℃で脱水した。これに、4,4'-メチレン-ビス（シクロヘキシルイソシアネート）700g、さらに、フォトクロミック化合物として1,3,3-トリメチルインドリノスピロナフトオキサジン8g、ジ-n-ブチル錫ジラウレート0.15gを加えて窒素気流下80℃にて15分間反応させた。次にこの反応混合物に鎖伸長剤としてエチレングリコール120gを加えて速やかに攪拌混合した。反応開始とともに発熱がみられ、均一な混合物を得た。

【0018】この液体反応混合物をテフロンパットに注ぎ込み、110℃、12時間に亘って反応させた。生成したポリマーをペレタイザーにより破砕しペレット化した。この粒状物を用い押し出し成形により0.8mmのフォトクロミック調光ポリウレタンシートを製造した。

【0019】（バイレイヤーガラスの製造）得られたポリウレタンシートを2枚の硝子の間に合わせた。この時1枚のガラスには予め、ポリジメチルシロキサンを均一に塗布し360℃で熱処理を施した。この非接着ガラス積層体をゴム袋に入れゴム袋の中を脱気し真空にした後そのまま120℃に加熱し30分保った（予備圧着工程）。その後、予備圧着されたガラス積層体をオートクレーブ内に移して、150℃、13kg/cm²の条件のもとで30分間保った（本接着工程）。この後ポリジメチルシロキサンで処理したガラスを剥がすことで、ガラス-ポリウレタンの2層の積層体であるバイレイヤーガラスとなった。

【0020】上記の方法によって作られたバイレイヤーガラスにガラス側から太陽光線を当てるとフォトクロミック化合物が反応してガラスがブルーに着色し調光性能を発揮することが確認できた。また、安全ガラスとしての性能を確認するために、JIS R3212に基づきポリウレタンシート面に対するテーパー摩耗試験及び落球テストを実施したところテーパー試験で100回転後のヘイズの増加は3.4%であり、落球試験においては、剛球は貫通せず、十分な耐貫通性能を示した。

【0021】実施例2

50 実施例1の4,4'-メチレン-ビス（シクロヘキシル

イソシアネート)の代わりにイソホロンジイソシアネート320 gを用い、実施例1と同様の方法でポリエステルジオールと15分反応させた。次に、1, 3, 3-トリメチルインドリノスピロナフトオキサジン8.0 g、ジ-n-ブチル錫ジラウレート0.05 gを用いて15分間反応させた。この反応混合物にエチレングリコール80 gを加えて速やかに攪拌混合した。反応開始とともに発熱がみられ、実施例1と同様に均一な混合物を得た。後は実施例1と同様の方法でバイレイヤーガラスを調製した。このバイレイヤーガラスも実施例1と同様に太陽光線を照射すると調光性能を示した。またテーパー摩耗試験の100回転後のヘイズの増加は3.2 %であった。

【0022】実施例3

ポリエステルジオールとして、水酸基価55であるポリε-カプロラクトンジオール500 gを用いた以外はすべて実施例1と同様に行なった。このバイレイヤーガラスも同様に太陽光線を照射すると調光性能を示した。またテーパー摩耗試験の100回転後のヘイズの増加は3.6 %であった。

【0023】実施例4

ポリエステルジオールとして、水酸基価55であるポリε-カプロラクトンジオール500 gとジイソシアネートとしてイソホロンジイソシアネート320 gを用いた以外はすべて実施例1と同様に行なった。このバイレイヤーガ

*ラスも同様に太陽光線を照射すると調光性能を示した。またテーパー摩耗試験の100回転後のヘイズの増加は3.6 %であった。

【0024】実施例5

鎖伸長剤としてエチレングリコールの代わりに1, 4-ブタンジオール80 gを用いた以外はすべて実施例1と同様に行なった。このバイレイヤーガラスも同様に太陽光線を照射すると調光性能を示した。またテーパー摩耗試験の100回転後のヘイズの増加は3.6 %であった。

10 【0025】実施例6

ポリエステルジオールとして、水酸基価55であるポリε-カプロラクトンジオール500 gと鎖伸長剤として1, 4-ブタンジオール80 gを用いた以外はすべて実施例1と同様に行なった。このバイレイヤーガラスも同様に太陽光線を照射すると調光性能を示した。またテーパー摩耗試験の100回転後のヘイズの増加は3.6 %であった。

【0026】実施例7~16

下記表1に示す組成のフォトクロミック調光ポリウレタンシートを用いた他は実施例1と同様に行ない実施例7

20 【0027】

【表1】

実施例	ポリエステルジオール ^(*)			鎖伸長剤 ^(**)		イソシアネート ^(**)		顔料使用量 ^(**)		フォトクロミック化合物 ^(**)		テーパー(%)	調光性能	耐摩耗性
	物質	水酸基価	使用量(g)	物質	使用量(g)	物質	使用量(g)	量(g)	物質	使用量(g)	量(g)			
1	(A)	55	1500	(D)	120	(E)	700	0.15	(G)	8	8	3.4	良好	良好
2	(A)	55	1500	(D)	120	(F)	605	0.15	(G)	8	8	3.2	良好	良好
3	(D)	55	1500	(D)	120	(E)	700	0.15	(G)	8	8	3.4	良好	良好
4	(D)	55	1500	(D)	120	(F)	605	0.15	(G)	8	8	3.4	良好	良好
5	(A)	55	1500	(D)	120	(E)	700	0.25	(G)	8	8	3.6	良好	良好
6	(D)	55	1500	(D)	120	(F)	605	0.15	(G)	8	8	3.4	良好	良好
7	(A)	55	1500	(D)	120	(B)	700	-	(G)	8	8	3.4	良好	良好
8	(A)	55	1500	(D)	120	(F)	605	-	(G)	8	8	3.2	良好	良好
9	(A)	55	1500	(D)	60	(D)	445	0.15	(G)	8	8	2.9	良好	良好
10	(A)	55	1500	(D)	90	(D)	575	0.15	(G)	8	8	3.7	良好	良好
11	(A)	55	1500	(D)	120	(D)	555	0.15	(G)	8	8	3.6	良好	良好
12	(A)	55	1500	(D)	90	(D)	445	0.15	(G)	8	8	3.7	良好	良好
13	(A)	55	1500	(D)	135	(D)	575	0.13	(G)	8	8	3.6	良好	良好
14	(A)	55	1500	(D)	270	(D)	955	0.15	(G)	8	8	3.6	良好	良好
15	(A)	111	1500	(D)	90	(D)	785	0.15	(G)	8	8	3.6	良好	良好
16	(A)	111	1500	(D)	135	(D)	785	0.15	(G)	8	8	3.6	良好	良好

*1 ポリエステルジオールにおいて、(A) はポリ(1, 4-ブチレンジアジレート)ジオール、(D) はポリ(ε-カプロラクトン)ジオールを使用した。

*2 鎖伸長剤において、(D) はエチレングリコールを、(B) は1, 4-ブタンジオールを使用した。

*3 イソシアネートにおいて、(E) は4, 4'-メチレン-ビス(シクロヘキシルイソシアネート)を、(F) はイソホロンジイソシアネートを使用した。

*4 顔料は、いずれもD-0-ブチル錫ジラウレートを使用した。

*5 フォトクロミック化合物において、(G) は1, 3, 3-トリメチルインドリノスピロナフトオキサジンを使用した。

【0028】

【発明の効果】以上説明してきたように、本発明によれば、その構成をフォトクロミック安全ガラスの合成樹脂層に熱可塑性ポリウレタンの反応段階に、フォトクロミック化合物も混合し、フォトクロミック化合物を均一に

分散した熱可塑性ポリウレタンシートを調製したものを使用することとしたため、PVBを用いない、熱可塑性ポリウレタンを使用したタイプのバイレイヤーガラスにおいても、フォトクロミック調光機能が良好に発現できるという効果が得られる。また、本発明においては、バ

イレイヤーガラスとしての安全性は述べる迄もない他、使用するガラスが一枚ですむので2枚のガラスを使用する合わせガラスに比べ軽量化できる。

【図面の簡単な説明】

【図1】 1層の熱可塑性ポリウレタン層を有する本発明の一例の積層安全ガラスの断面図である。

【図2】 2層構造の合成樹脂層を有する本発明の他の例の積層安全ガラスの断面図である。

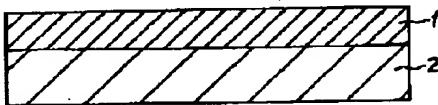
【図3】 従来の合わせガラスタイプの積層体の断面図で

ある。

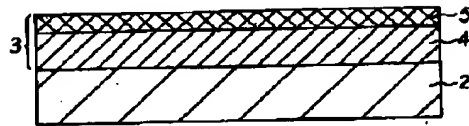
【符号の説明】

- 1 熱可塑性ポリウレタン層
- 2 無機ガラス層
- 3 合成樹脂層
- 4 熱可塑性ポリウレタン層
- 5 耐溶媒性の表面処理を施した層
- 6 透明支持体
- 7 フォトクロミック中間膜

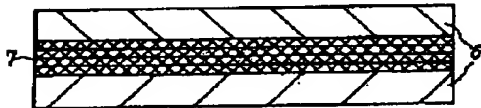
【図1】



【図2】



【図3】



フロントページの続き

(72)発明者 前田 修一
神奈川県横浜市緑区鴨志田町1000番地 三
菱化成株式会社総合研究所内

(72)発明者 三ツ橋 和夫
神奈川県横浜市緑区鴨志田町1000番地 三
菱化成株式会社総合研究所内

(72)発明者 梅林 正憲
三重県松阪市川井町436-1

(72)発明者 中村 功
三重県伊勢市藤里町68-238

DECLARATION

I, Tadashi YAMAMOTO, a national of Japan, c/o Yamamoto International Patent Office of 520 Sanno Urbanlife, 1-8, Sanno 2-chome, Oota-ku, Tokyo 143-0023, Japan do hereby solemnly and sincerely declare:-

- 1) THAT I am well acquainted with both Japanese Language and English language, and
- 2) THAT the attached document is a full, true and faithful partial translation into English made by me of Japanese Patent Kokai (Laid-Open) No. 4-226750

The undersigned declarant declares further that all statements made herein of his own knowledge are true and that all statements made on information and belief are believed to be true; and further that these statements were made with the knowledge that willful false statements and the like so made are punishable by fine or imprisonment, or both, under section 1001, of Title 18 of the United States Code and that such willful false statements may jeopardize the validity of the application or any patent issuing thereon.

Singed this day of October 8, 2002.



Tadashi YAMAMOTO

Partial English translation of Japanese Patent Kokai (Laid-Open)

Patent Laid-Open No. 4-226750

Laid-Open date : August 17, 1992

Request for Examination : None

Patent Application No. 2-418084

Application date : December 28, 1990

Inventor(s) : Hitoshi Ito, et al

Applicant : Nissan Motor Co., Ltd., et al

Title of the invention : Laminated safety glass with photochromic
light-adjustable function

(Names of individuals and corporation have been translated phonetically)

Claim 1 : A laminated safety glass with a photochromic light-adjustable function comprising a transparent safety glass composed of a laminate having a structure of at least two layers of a glass layer and a synthetic resin layer, wherein the synthetic resin layer has a thermoplastic polyurethane layer containing a photochromic compound.

(Page 2, col. 2, lines 1 to 28)

【0006】

The above-mentioned thermoplastic polyurethane to be used in the present invention is obtained by reacting three components of polyester diol, diisocyanate and an aliphatic diol having 2 to 10 carbon atoms or diamine as a chain extender.

【0007】

Polyester diol to be used can be selected from poly (ϵ -caprolactone) diol, poly (1,4-butylene adipate) diol and poly (1,4-butylene azelate) diol.

【0008】

Next, as diisocyanate to be used, it is preferable to use diisocyanate having no isocyanate group direct to an aromatic ring because non-yellow diisocyanate is preferable from the aspect of use of a glass. In detail, 4-4'-methylene-bis (cyclohexylisocyanate), isophoronediiisocyanate, isopropylidene-(cyclohexylisocyanate), methylcyclohexyldiisocyanate and hexamethylenediisocyanate can be selected.

【0009】

Next, aliphatic diol having 2 to 10 carbon atoms to be used as a chain extender can be selected from ethylene glycol, 1,4-butanediol, propylene glycol, 1,3-propanediol, diethylene glycol, dipropylene glycol, neopentyl glycol and 1,6-hexanediol dimethylol propionic acid, among which ethylene glycol and 1,4-butanediol are preferable. Further, diamine can be selected from ethylenediamine, tetramethylenediamine, hexamethylene diamine, isophoronediamine and 1,4-diaminocyclohexane.

(Page 3, col. 3, lines 44 to 45)

【0014】

It is preferable that lamination between this synthetic glass sheet and a glass plate is performed by heat pressing.

(Page 3, col. 4, lines 1 to 4)

【0015】

The laminated safety glass of the present invention, i.e., bilayer glass is suitable to a front glass for car and can be applied also to another glass for car and window glass for building.

(Page 3, col. 4, lines 12 to 28)

【0017】

Example 1

(Production of photochromic light-adjustable polyurethane sheet)

1500g of poly(1,4-butylene adipate) diol having a hydroxyl group value of 56 was dehydrated under vacuum at 110°C. 700g of 4,4'-methylene-bis(cyclohexylisocyanate), 8g of 1,3,3-trimethylindolino-spiro-naphthooxadine and 0.15g of di-n-butyltin dilaurate were added thereto and reacted in a nitrogen gas stream at 80°C for 15 minutes. Then, 120g of ethylene glycol as a chain extender was added to this mixture and rapidly mixed with stirring. Exothermic occurred with starting of the reaction, thus obtaining a uniform mixture.

【0018】

This liquid reaction mixture was poured into a Teflon vat and reacted at 110°C for 12 hours. The polymer thus produced was grinding-pelletized with a pelletizer. A photochromic light-adjustable polyurethane sheet of 0.8 mm was produced from this granule by an extrusion molding.